

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 02-069545

(43)Date of publication of application : 08.03.1990

(51)Int.Cl.

C08L 23/16
// (C08L 23/16
C08L 15:00)

(21)Application number : 63-222952

(71)Applicant : KURARAY CO LTD

(22)Date of filing : 05.09.1988

(72)Inventor : TAKAMATSU HIDEO
HIRAYAMA YOSHIO
ISHII MASAO
KONO NAOTAKE

(54) RUBBER COMPOSITION IMPROVED IN ADHESIVENESS

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject rubber composition, excellent in adhesiveness and suitable as automotive parts, building materials, etc., by blending ethylene-propylene-based copolymer rubber with a specific hydrogenated low-molecular weight conjugated diene-based polymer.

CONSTITUTION: A rubber composition obtained by blending (A) 97-70wt.% ethylene-propylene-based copolymer (100000-300000 molecular weight) or ethylene-propylene-nonconjugated diene terpolymer with (B) 3-30wt.% modified hydrogenated low-molecular weight conjugated diene-based polymer prepared by adding 0.1-20 pts.wt., preferably 0.5-13 pts.wt. maleic anhydride (derivative) to 100 pts.wt. hydrogenated low-molecular weight conjugated dienebased polymer having 10000-100000 molecular weight.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平2-69545

⑬ Int. Cl.⁵
C 08 L 23/16
//C 08 L 23/16
15:00

識別記号
LCB

庁内整理番号
7107-4J

⑭ 公開 平成2年(1990)3月8日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全8頁)

⑮ 発明の名称 接着性に優れたゴム組成物

⑯ 特 願 昭63-222952

⑰ 出 願 昭63(1988)9月5日

⑱ 発 明 者	高 松	秀 雄	茨城県鹿島郡神栖町東和田36番地	株式会社クラレ内
⑱ 発 明 者	平 山	吉 男	茨城県鹿島郡神栖町東和田36番地	株式会社クラレ内
⑱ 発 明 者	石 井	正 雄	茨城県鹿島郡神栖町東和田36番地	株式会社クラレ内
⑱ 発 明 者	港 野	尚 武	茨城県鹿島郡神栖町東和田36番地	株式会社クラレ内
⑲ 出 願 人	株 式 会 社 ク ラ レ			岡山県倉敷市酒津1621番地
⑳ 代 理 人	弁 理 士 本 多 堅			

明 細 書

1. 発明の名称

接着性に優れたゴム組成物

2. 特許請求の範囲

エチレン-プロピレン系共重合ゴムと、炭素-炭素二重結合の50%以上が水添され、分子量が10,000~100,000の水添低分子量共役ジエン系重合体100重量部に無水マレイン酸またはその誘導体が0.1~20重量部付加した変性水添低分子量共役ジエン系重合体とを必須成分として含有し、エチレン-プロピレン系共重合ゴムと変性水添低分子量共役ジエン系重合体の比率が両者の合計重量に対し後者が3~30重量%である接着性に優れたゴム組成物。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は接着性に優れたエチレン-プロピレン系共重合ゴム組成物に関する。

(従来の技術及び発明が解決しようとする課題)

エチレン-プロピレン系共重合ゴムは耐熱、耐候性、耐オゾン性に優れたゴムであり、比較的高温の雰囲気で使用される場合、日光、外気に曝される用途で優れた耐久性を有し、自動車、建築、電気工業用品等の分野で広く使われている。しかしながらこのエチレン-プロピレン系共重合ゴムはその極性が低く、また官能基ももたないことから金属、繊維あるいはジエン系ゴム等の他のゴム等の材料との接着性が著しく悪い。この為、エチレン-プロピレン系共重合ゴムの使用用途が限定されているのが現状である。

この接着性を改善する目的で天然ゴム、SBR等をブレンドする方法、低分子量のポリイソプレンをブレンドする方法(特開昭56-59852)等が知られている。しかしながらジエン系ゴムとブレンドする方法においては接着性を改善する為には多量のジエン系ゴムをブレンドする必要がありエチレン-プロピレン系共重合ゴムの耐熱性、耐候性が損なわれ、また本来相溶性が良くないことから

機械的性質が低下してしまう等の問題を生じやすい。また低分子量のポリイソブレンをブレンドする方法についても金属との接着の改良効果が十分ではなくまた、低分子量のものをブレンドすることから機械的性質の低下も大きいものである。また別の方法として接着しようとするゴムの面に紫外線照射をする、濃硫酸で処理する等の方法も知られているがいずれも工業的には使用できない方法であった。

本発明は上記欠点を併なうことなく金属等との接着力が改善されたエチレン-プロピレン系共重合ゴム組成物を提供するものである。

(課題を解決するための手段)

本発明はエチレン-プロピレン系共重合ゴムと、炭素-炭素二重結合の50%以上が水添され、分子量が10,000~100,000の水添低分子量共役ジエン系重合体100重量部に無水マレイン酸またはその誘導体が0.1~20重量部付加した変性水添低分子量共役ジエン系重合体とを必須成分として含有し、エチレン-プロピレン系共重合ゴムと変性水添低

から有機リチウム系開始剤を用いたアニオンリビング重合による方法が最も好ましく用いられる。

水添低分子量共役ジエン系重合体は分子量が10,000~100,000の範囲のものが用いられる。分子量が上記範囲より小さい場合にはエチレン-プロピレンゴムにブレンドし使用した場合、その機械的性質の低下が著しくまた、上記範囲を越える場合には無水マレイン酸またはその誘導体の付加反応が極めて困難になり、また接着性の改良の効果も十分得られない。より好ましくは分子量は15,000~55,000の範囲にあるのが良い。

本発明においては低分子量共役ジエン系重合体の炭素-炭素二重結合の50%以上を水添したものが用いられる。水添率が50%より小さい場合には、エチレン-プロピレン系共重合ゴムとの相溶性が悪くなり機械的強度を大きく低下させるし、耐熱性、耐候性を損なうことになる。かかる観点から水添率は65%以上であるのがより好ましい。

低分子量共役ジエン系重合体の水添は、均一系触媒、不均一系触媒を用いる公知の手法により行

分子量共役ジエン系重合体の比率が両者の合計重量に対し後者が3~30重量%である接着性に優れたゴム組成物を提供する。

次に本発明をさらに詳しく説明する。

低分子量共役ジエン系重合体としてはイソブレン、ブタジエン等の共役ジエンモノマーの単独または共重合体(相互使用比率は任意でよい)が、あるいはまた、スチレン等の芳香族ビニル系モノマー等との共重合体が用いられる。これらのうちイソブレンの単独重合体、イソブレンとブタジエンの共重合体がよく好ましく用いられる。共役ジエンモノマー以外のモノマーとの共重合体を用いる場合には共役ジエンモノマーの量比が概ね80mol%以上のものを用いるのが好ましい。かかる低分子量共役ジエン系重合体は公知の方法により得ることが出来る。その例として過酸化物、アゾ化合物等を開始剤として共役ジエン系モノマーをラジカル重合する方法、あるいは有機リチウム系化合物等によりアニオン重合する方法があるが、反応の容易さ、分子量の制限が容易に行えること

うことができる。

均一系触媒を用いる場合、ヘキサン、シクロヘキサン等の飽和炭化水素やベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素を溶媒とし、常温~150℃の反応温度で常圧~50kg/cm²の水素圧下で水素添加反応が行われる。均一系触媒としては遷移金属の有機化合物とアルミニウム、アルカリ土類金属もしくはアルカリ金属などのアルキル化物との組み合わせによるチーグラー触媒等をポリマーの二重結合当たり0.01~0.1mol%程度使用する。反応は1~50時間で終了する。反応終了後、反応液を水洗することにより触媒を除去し、さらに減圧あるいは加熱することにより溶媒を留去し生成物を得ることができる。場合によっては多量のメタノール等の生成物の非溶媒に洗浄後の反応液を注ぎ、生成物を分離した後、上記の乾燥操作を行っても良い。なお水洗の際には酸性の状態で行う方がより触媒が除去しやすいことから塩酸、酢酸等の酸を少量添加するのがより好ましい。

不均一系触媒を用いる場合、水、あるいはヘキ

サン、シクロヘキサン等の飽和炭化水素やベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素、ジエチルエーテル、THF、ジオキサン等のエーテル類、エタノール、イソプロパノール等のアルコール類等あるいはこれらの混合物を溶媒とし、常温～250℃の反応温度で常圧～200kg/cm²の水素圧下で水素添加反応が行われる。不均一系触媒としてはニッケル、コバルト、パラジウム、白金、ロジウム、ルテニウム等の触媒を単独であるいはシリカ、ケイソウ土、アルミナ、活性炭等の担体に担持して用い、使用量はポリマー重量に対して0.5～10重量%が適当である。反応は通常1～50時間で終了する。反応終了後、容器から反応生成物を抜き出し、触媒を濾別して得られた濾液から溶媒を留去することにより水添低分子量ジエン系重合体を得る。

得られた水添低分子量ジエン系重合体に無水マレイン酸またはその誘導体を付加する。無水マレイン酸の誘導体としてはマレイン酸モノメチル、マレイン酸モノエチル、マレイン酸ジメチル、マ

レイン酸ジエチル等のマレイン酸エステル類、マレイン酸モノメチルアミド、マレイン酸モノエチルアミド等のマレイン酸アミド類、マレイミド、N-フェニルマレイミド等のマレイミド類等が挙げられる。無水マレイン酸またはその誘導体と水添低分子量共役ジエン系重合体との反応は、両者を混合し加熱することにより容易に行える。共役ジエン系重合体の水添率が高い場合には過酸化物、アゾ化合物等のラジカル触媒を使用することにより好結果が得られる場合が多い。ラジカル触媒は無水マレイン酸またはその誘導体に対し0.1～10重量%用いるのが好ましい。

反応は無溶媒で行うことも可能であるが、粘度が高すぎて混合が容易でない場合には溶媒の使用も可能である。ここで使用できる溶媒としては、無水マレイン酸またはその誘導体あるいは触媒を用いる場合にはその触媒に対し不活性なものであれば特に制限はないが、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素が特に好ましく用いられる。

無水マレイン酸またはその誘導体の付加量は水

添低分子量ジエン系重合体100重量部に対して0.1～20重量部であることが必要である。付加量が上記範囲より少ない場合には接着力向上効果は得られず、上記範囲を越えると、エチレン-プロピレン系共重合ゴムとの相溶性が著しく悪くなり機械的強度が著しく低下し、また接着力もむしろ低下し好ましくない。上記範囲は0.5～13重量部の範囲にあるのがより好ましい。上記反応は100～250℃で通常0.5～50時間行う。

反応終了後、反応混合物を減圧で加熱して未反応無水マレイン酸もしくはその誘導体、及び反応溶媒を除去するか、反応混合物を大量のメタノール等に注ぎ反応生成物を析出させ、これを加熱あるいは減圧下で乾燥することにより変性水添低分子量ジエン系重合体を得る。

無水マレイン酸誘導体の付加はまた無水マレイン酸を付加後、常法によって誘導体とすることによって行うこともできる。これらの手法についてさらに詳しく述べると、エステル化の場合、メタノール、エタノール等のアルコールを常温ないし

130℃の温度で混合することにより容易に半エステル化することができる。このとき触媒としてピリジン、2-メチルイミダゾール等の触媒を用いることも可能である。またさらに硫酸等を触媒としさらに反応を続けることによりジエステル化することが可能である。アミド化する場合、モノメチルアミン、モノエチルアミン等のアミンを常温～130℃で混合し反応させることにより容易にアミド化することができる。またアンモニア、アニリン等を反応させた後さらに160～250℃に加熱することによりアミドからイミドに変換することができる。いずれの場合にも反応溶媒を用いることが可能であり脂肪族、芳香族の炭化水素が好ましく用いられる。それぞれの誘導体への変換は完全あるいは部分的に任意の割合まで行い得る。

反応後、反応混合物を加熱あるいは減圧下で乾燥することにより未反応のアルコール、アミンあるいは反応溶媒等を除去するか、反応混合物を大量のメタノール等の溶媒に注ぎ生成物を沈澱させ、これを加熱あるいは減圧下で乾燥することにより

変性水添低分子量共役ジエン系重合体を得ることができる。

また無水マレイン酸またはその誘導体の付加反応は水添した後の低分子量共役ジエン系重合体に対し行う外、付加反応の後、前記の方法による水添反応を行う方法も採り得る。

このようにして得られた変性水添低分子量共役ジエン系重合体をエチレン-プロピレン系共重合ゴムにブレンドする。

本発明で使用するエチレン-プロピレン系共重合ゴムはエチレン-プロピレン系共重合体、エチレン-プロピレンと非共役ジエンの三元共重合体が用いられる。エチレンとプロピレンの共重合比は特に制限はないが、加工性、加硫物の物性の点からプロピレン15~50mol%が好ましい。共重合される非共役ジエンとしてはジシクロペンタジエン、エチリデンノルボルネン、1,4-ヘキサジエン等が用いられ、その量は0.1~5mol%の範囲が好ましい。さらにこのエチレン-プロピレン系共重合体の分子量についても特に制限はないが、10~30万

が好ましい。

エチレン-プロピレン系共重合ゴムはそれ自体公知であるか、公知の方法により得ることができる(例えば「ゴム工業便覧」日本ゴム協会発行)。例えば触媒として塩化バナジウム、オキシ塩化バナジウム等のバナジウム化合物とトリアルキルアルミニウム、アルキルアルミニウムハライド等のアルミニウム化合物の組合せ触媒、溶媒として飽和脂肪族、芳香族炭化水素またはハロゲン化炭化水素を用いエチレンとプロピレン、場合によってはさらにシクロペンタジエン、エチリデンノルボルネン等の非共役ジエンを共重合させることにより得ることができる。

変性水添低分子量共役ジエン系重合体のブレンド量はこれとエチレン-プロピレン系共重合ゴムの合計量に対し3~30重量%である。

ブレンドする量が上記範囲より少ない場合には接着性の改善効果は得られず、上記範囲を越える場合には機械的強度の低下が著しく好ましくない。

本発明による組成物はエチレン-プロピレン系

共重合ゴムと変性水添低分子量共役ジエン系重合体を必須成分とする他、通常のゴム配合において使用される各種配合剤を含有していてもよい。その例としてはイオウ、パーオキサイド等の加硫剤、加硫促進剤、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、カーボンブラック、シリカ等の充填剤・補強剤、ポリブテン、プロセスオイル等の軟化剤・可塑剤、2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール等の老化防止剤等が挙げられる。各配合剤のエチレン-プロピレン系共重合ゴムと変性水添低分子量共役ジエン系重合体の合計量100重量部に対する使用量は加硫剤 0.5~20重量部、加硫促進剤 0.05~5重量部、充填剤・補強剤 10~300重量部、軟化剤・可塑剤 5~250重量部、老化防止剤0.5~10重量部が好ましい。

本発明組成物の調製はゴム工業において通常用いられている方法により行われる。すなわち、オープンロール、バンバリーミキサーあるいはニーダー等の混合機を用いて、常温ないし180℃程度の温度範囲で混合することにより行われる。

本発明の組成物は金属、繊維、ジエン系ゴム等他のゴム等の材料との接着性に優れるが、その接着の様式は板状、布状の材料と貼り合わせて接着する方法、糸、コード、帯状のものをゴム中に埋め込んで接着する方法等、様々な方法が採り得る。また他のゴムとの接着の場合には両者を貼り合わせた形、つき合わせた形等が採られる。接着させるに当たり、各種配合剤を添加した組成物と金属、繊維、他のゴムを求める形状にし、これを加熱し加硫することにより組成物が加硫されると同時に他の材料との接着がなされる。加硫方法としてはプレスにより加圧、加熱する方法、オーブン中で加熱空気により加熱する方法等が採られる。加熱条件は100~200℃で、0.1~5時間が適当である。

本発明による組成物は接着性に優れることから自動車用部品、建築用資材、ゴムホース等工業用品、引布等に好ましく用いられる。

(実施例)

製造例-1

n-BuLiを触媒としてイソブレンを重合することにより分子量が35,000の低分子量ポリイソブレンを得た。これをヘキサンに溶解し触媒としてPd-C (Pd5%)を5重量%添加し、水素圧35kg/cm²で水添反応を行った。反応時間を変えることにより水添率の異なる水添低分子量ポリイソブレンを得た。各々の分子量、水添率を表-1に示す。各々の水添低分子量ポリイソブレンを用い無水マレイン酸の付加反応を行った。反応は無溶媒で200℃で両者を13時間加熱混合して行った。反応終了後、反応生成物を大量のアセトンで洗浄し変性水添低分子量ポリイソブレンを得た。各々の無水マレイン酸の付加量を表-1に示す。また、未水添の低分子量ポリイソブレンに同様に無水マレイン酸を付加させ変性水添低分子量ポリイソブレンを得た。

物を作成した。得られた配合物の加硫物の物性と垂鉛メッキスチールコードとの接着力を測定した。結果を表-2に示す。

表-1

	変性水添 低分子量 ポリイソブレン (I)	" (II)	" (III)	変性低 分子量 ポリイソブ レン
分子量 ¹⁾	32500	32300	32100	32000
水添率(%)	85	65	35	—
無水マレイン酸 ²⁾ 付加量(重量部)	4.3	4.6	4.1	4.2

1) 水添低分子量ポリイソブレンの分子量

2) 水添低分子量ポリイソブレン100重量部に対
する付加重量

以下余白

実施例-1, 2及び比較例-1, 2

上記のようにして得られた変性水添低分子量ポリイソブレンを用い表-2に示す処法により配合

表-2

	実施例-1	2	比較例-1	2	3
EPDM ¹⁾	80	80	80	80	100
変性水添低分子量ポリイソブレン (I)	20	—	—	—	—
" (II)	—	20	—	—	—
" (III)	—	—	20	—	—
変性低分子量ポリイソブレン	—	—	—	20	—
GPF カーボン	45	←	←	←	←
ZnO	5	←	←	←	←
ステアリン酸	1	←	←	←	←
イオウ	1.5	←	←	←	←
加硫促進剤 CZ ²⁾ /TRA ²⁾	1.5/0.5	←	←	←	←
老化防止剤 224 ³⁾	1	←	←	←	←
ナフテン酸コバルト	3	←	←	←	←
加硫物物性 ⁴⁾					
TB (kg/cm ²)	140	131	122	109	144
EB (%)	360	390	460	560	340
HS (TIS-A)	66	67	64	66	67
スチールコードとの接着力 ⁵⁾ (kg)	148	135	101	105	83

- 1) EPDM EPDM: エチレン-プロピレン-非共役ジエン三元共重合体
三井EPT4045(三井石油化学工業(株)製)
- 2) CZ ノクセラーCZ: N-シクロヘキシル-2-ペンゾチアジルスルフェンアミド(大内新興化学(株)製)
- 3) TRA ノクセラーTRA: ジペンタメチレンチウラムテトラスルフィド(大内新興化学(株)製)
- 4) 224 ノクラック224: 2,2,4-トリメチル-1,2-ジヒドロキノリンの重合体(大内新興化学(株)製)
- 5) 加硫条件 150℃、45分 プレス加硫
- 6) 測定条件 垂鉛メッキスチールコード(7×7)を使用し引き抜き法により接着力測定

表-2から明らかなように未水添あるいは水添率が35%と低い低分子量ポリイソブレンを用いた場合には接着力の改善の効果も少なく、加硫物の機械的強度の低下が大きい。これに対して本発明による組成物は接着力の著しい改善効果と、十分

な加硫物の強度を有している。

製造例-2

n-BuLiの量を変えてイソブレンを重合することにより表-3に示す分子量の低分子量ポリイソブレンを得た。これを製造例-1と同様の方法により水添した。これに製造例-1と同様にして無水マレイン酸の付加反応を行った。付加反応後、さらにメタノールを20重量部添加し120℃で5時間加熱することによりメタノールと無水マレイン酸とを反応させた後、減圧で乾燥することにより無水マレイン酸をモノメチルエステル化した。得られた変性水添低分子量ポリイソブレンの性状を表-3に示す。

実施例-3、4及び比較例-4

上記で得られた変性水添低分子量ポリイソブレンを用い表-4に示す処法により実施例-1と同様に接着力の評価をした。結果を表-4に示す。

表-3

変性水添低分子量ポリイソブレン					
	(IV)	(V)	(VI)	(VII)	(VIII)
分子量 ¹⁾	22100	←	←	←	←
水添率(%)	78	←	←	←	←
無水マレイン酸 ²⁾	0.8	6.3	10.5	0	23
付加量(重量部)					

1), 2) 表-1におけると同様

以下余白

表-4

	実施例-3	4	5	比較例-4	5
EPDM	85	85	85	85	85
変性水添低分子量ポリイソブレン (IV)	15	—	—	—	—
“ (V)	—	15	—	—	—
“ (VI)	—	—	15	—	—
“ (VII)	—	—	—	15	—
“ (VIII)	—	—	—	—	15
GPP	45	←	←	←	←
ZnO	5	←	←	←	←
ステアリン酸	1	←	←	←	←
イオウ	1.5	←	←	←	←
加硫促進剤 CZ/TRA	1.5/0.5	←	←	←	←
老化防止剤 224	1	←	←	←	←
ナフテン酸コバルト	3	←	←	←	←
加硫物物性					
TS	139	148	139	133	—
EB	400	380	380	400	—
HS	69	73	75	66	—
スチールコードとの接着力 (kg)	101	153	161	79	—

無水マレイン酸の付加量の多い変性水添低分子量ポリイソブレン (VII) はEPDMとの相溶性が著しく悪く均一な配合物を作り得ず物性評価は行えなかった。無水マレイン酸を付加していない (VIII) を用いた場合には加硫物の物性は十分であるものの接着力の改善効果は全く見られない。

これに対し本発明による組成物では加硫物物性、接着力いずれも十分な値を示している。

表-5

分子量 ¹⁾	56,400
水添率 (%)	91
無水マレイン酸 ²⁾	2.5
付加量 (重量部)	

1), 2) 表-1 におけると同様

以下余白

実施例-5、6、7及び比較例-5、6

n-BuLiの使用量を変えてイソブレンを重合し製造例-2と同様にして表-5に示す性状の変性水添低分子量ポリイソブレン (IX) を得た。

得られた変性水添低分子量ポリイソブレンを用い実施例-1と同様に接着力の評価をした。結果を表-6に示す。

EPDMとのブレンド量が0の場合にはその効果は見られず、多くなりすぎると接着力はむしろ低下している。

表-6

	実施例-8	9	10	比較例-5	6
EPDM	95	85	75	100	60
変性水添低分子量ポリイソブレン (IX)	5	15	25	0	40
GPP	45	←	←	←	←
ZnO	5	←	←	←	←
ステアリン酸	1	←	←	←	←
イオウ	1.5	←	←	←	←
加硫促進剤 CZ/TRA	1.5/0.5	←	←	←	←
老化防止剤 224	1	←	←	←	←
ナフテン酸コバルト	3	←	←	←	←
スチールコードとの接着力 (kg)	135	143	149	83	56

〔発明の効果〕

本発明のエチレン-プロピレン系共重合ゴム組成物はエチレン-プロピレン系共重合ゴムの性質を損なうことなく、その接着性を改善するものである。

特許出願人 株式会社 ク ラ レ

代 理 人 弁 理 士 本 多 堅

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.